

PCT/JP 02/03137

日 本 国 特 許 庁  
JAPAN PATENT OFFICE

29.03.02

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office

出 願 年 月 日  
Date of Application:

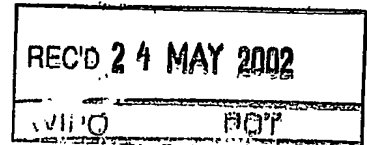
2002年 3月13日

出 願 番 号  
Application Number:

特願2002-068185

[ST.10/C]:

[JP2002-068185]



出 願 人  
Applicant(s):

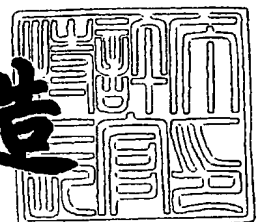
松下電器産業株式会社

**PRIORITY  
DOCUMENT**  
SUBMITTED OR TRANSMITTED IN  
COMPLIANCE WITH RULE 17.1(a) OR (b)

2002年 5月 7日

特許庁長官  
Commissioner,  
Japan Patent Office

及川耕造



BEST AVAILABLE COPY

出証番号 出証特2002-3032140

【書類名】 特許願

【整理番号】 R6188

【提出日】 平成14年 3月13日

【あて先】 特許庁長官 殿

【国際特許分類】 H05B 33/04

【発明者】

【住所又は居所】 大阪府門真市大字門真1006番地 松下電器産業株式会社内

【氏名】 佐谷 裕司

【特許出願人】

【識別番号】 000005821

【氏名又は名称】 松下電器産業株式会社

【代理人】

【識別番号】 110000040

【氏名又は名称】 特許業務法人池内・佐藤アンドパートナーズ

【代表者】 池内 寛幸

【電話番号】 06-6135-6051

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 139757

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【包括委任状番号】 0108331

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 有機発光素子及びその製造方法

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 非晶質酸化物と、ホウ素酸化物、リン酸化物、ナトリウム酸化物、カリウム酸化物、鉛酸化物、チタン酸化物、マグネシウム酸化物及びバリウム酸化物からなる群から選択された少なくとも 2 種類の酸化物とを含むガスバリア膜を基板に形成したガスバリア膜付き基板を用いたことを特徴とする有機発光素子。

【請求項 2】 前記選択された少なくとも 2 種類の酸化物が、原子半径が大きい元素の酸化物と、原子半径が小さい元素の酸化物とを組み合わせたものである請求項 1 に記載の有機発光素子。

【請求項 3】 前記基板が、ガラス又はプラスチックから形成されている請求項 1 に記載の有機発光素子。

【請求項 4】 前記プラスチックが、アクリル系樹脂、エポキシ系樹脂、珪素系樹脂、ポリイミド系樹脂、ポリカーボネート系樹脂、ポリビニルアルコール系樹脂及びポリエチレン系樹脂からなる群から選択された少なくとも 1 種類の樹脂又はそれらの共重合体である請求項 3 に記載の有機発光素子。

【請求項 5】 ガスバリア膜付き基板を用いた有機発光素子の製造方法であって、非晶質酸化物と、ホウ素酸化物、リン酸化物、ナトリウム酸化物、カリウム酸化物、鉛酸化物、チタン酸化物、マグネシウム酸化物及びバリウム酸化物からなる群から選択された少なくとも 2 種類の酸化物とを含むガスバリア膜を基板の少なくとも片面に形成することを特徴とする有機発光素子の製造方法。

【請求項 6】 前記選択された少なくとも 2 種類の酸化物が、原子半径が大きい元素の酸化物と、原子半径が小さい元素の酸化物とを組み合わせたものである請求項 5 に記載の有機発光素子の製造方法。

【請求項 7】 前記基板が、ガラス又はプラスチックから形成されている請求項 5 に記載の有機発光素子の製造方法。

【請求項 8】 前記プラスチックが、アクリル系樹脂、エポキシ系樹脂、珪素系樹脂、ポリイミド系樹脂、ポリカーボネート系樹脂、ポリビニルアルコール系

樹脂及びポリエチレン系樹脂からなる群から選択された少なくとも1種類の樹脂又はそれらの共重合体である請求項7に記載の有機発光素子の製造方法。

【請求項9】 ガスバリア膜付き基板を用いた有機発光素子の製造方法であって、非晶質酸化物と、ホウ素酸化物、リン酸化物、ナトリウム酸化物、カリウム酸化物、鉛酸化物、チタン酸化物、マグネシウム酸化物及びバリウム酸化物からなる群から選択された少なくとも2種類の酸化物とを含むガスバリア膜を基板の少なくとも片面に形成した後、前記ガスバリア膜を熱処理することを特徴とする有機発光素子の製造方法。

【請求項10】 前記熱処理の温度が、前記ガスバリア膜の成膜温度以上で且つ前記基板のガラス転移温度以下の温度である請求項9に記載の有機発光素子の製造方法。

【請求項11】 前記選択された少なくとも2種類の酸化物が、原子半径が大きい元素の酸化物と、原子半径が小さい元素の酸化物とを組み合わせたものである請求項9に記載の有機発光素子の製造方法。

【請求項12】 前記基板が、ガラス又はプラスチックである請求項9に記載の有機発光素子の製造方法。

【請求項13】 前記プラスチックが、アクリル系樹脂、エポキシ系樹脂、珪素系樹脂、ポリイミド系樹脂、ポリカーボネート系樹脂、ポリビニルアルコール系樹脂及びポリエチレン系樹脂からなる群から選択された少なくとも1種類の樹脂又はそれらの共重合体である請求項12に記載の有機発光素子の製造方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、ガスバリア膜付き基板を用いた有機発光素子及びその製造方法に関するものである。

【0002】

【従来の技術】

エレクトロルミネッセンス（EL）パネルは、視認性が高く、表示能力に優れ、高速応答も可能という特徴を持っており、将来の電子機器等の表示装置として

期待されている。このため、近年ELパネルに用いる有機発光素子について盛んに研究が行われている。

#### 【0003】

一般に、有機発光素子は、ガラス基板上に配置された陰極と陽極の間に蛍光性化合物を含む有機発光層を挟んだ構造を有し、この有機発光層に電子及び正孔が注入されてこれらが再結合すると励起子が生成し、この励起子が失活する時に光を発するものである。

#### 【0004】

##### 【発明が解決しようとする課題】

しかし、有機発光素子は外部からの酸素や水蒸気等の素子内への侵入に極めて弱く、これらの侵入によりすぐに発光性能が低下するという問題がある。現在は、外部からの酸素や水蒸気等の素子内への侵入をガラス基板により防止しているが、ガスの透過量を $0.01\text{ g/m}^2$ 以下（測定限界以下）にする必要がある有機発光素子ではガラス基板のみでは不十分である。

#### 【0005】

また、最近ではガラス基板に代えてプラスチック基板を用いることも検討されている。これは、プラスチック基板はガラス基板に比べて軽量であり、強度も大きいためである。しかし、プラスチック基板はガラス基板に比べて酸素や水蒸気等のガス透過性が高いという問題があり、現時点ではプラスチック基板を有機発光素子に使用することは極めて困難である。

#### 【0006】

本発明は前記従来の問題を解決するためになされたものであり、ガスバリア性に優れた基板を用いた有機発光素子及びその製造方法を提供することを目的とする。

#### 【0007】

##### 【課題を解決するための手段】

前記目的を達成するため、本発明の有機発光素子は、非晶質酸化物と、ホウ素酸化物、リン酸化物、ナトリウム酸化物、カリウム酸化物、鉛酸化物、チタン酸化物、マグネシウム酸化物及びバリウム酸化物からなる群から選択された少なく

とも 2 種類の酸化物とを含むガスバリア膜を基板に形成したガスバリア膜付き基板を用いたことを特徴とする。

【0 0 0 8】

また、本発明の有機発光素子の製造方法は、ガスバリア膜付き基板を用いた有機発光素子の製造方法であって、非晶質酸化物と、ホウ素酸化物、リン酸化物、ナトリウム酸化物、カリウム酸化物、鉛酸化物、チタン酸化物、マグネシウム酸化物及びバリウム酸化物からなる群から選択された少なくとも 2 種類の酸化物とを含むガスバリア膜を基板の少なくとも片面に形成することを特徴とする。

【0 0 0 9】

また、本発明の有機発光素子の製造方法は、ガスバリア膜付き基板を用いた有機発光素子の製造方法であって、非晶質酸化物と、ホウ素酸化物、リン酸化物、ナトリウム酸化物、カリウム酸化物、鉛酸化物、チタン酸化物、マグネシウム酸化物及びバリウム酸化物からなる群から選択された少なくとも 2 種類の酸化物とを含むガスバリア膜を基板の少なくとも片面に形成した後、前記ガスバリア膜を熱処理することを特徴とする。

【0 0 1 0】

【発明の実施の形態】

本発明の有機発光素子は、非晶質酸化物と、ホウ素酸化物、リン酸化物、ナトリウム酸化物、カリウム酸化物、鉛酸化物、チタン酸化物、マグネシウム酸化物及びバリウム酸化物からなる群から選択された少なくとも 2 種類の酸化物とを含むガスバリア膜を基板に形成したガスバリア膜付き基板を用いたものである。

【0 0 1 1】

上記非晶質酸化物としては、網目構造を有する珪素酸化物等を用いることができる。

【0 0 1 2】

また、上記非晶質酸化物に含有させる他の酸化物としては、網目構造を有する非晶質酸化物のランダムな空孔を塞ぎ得るものであることが必要であり、原子半径が大きい元素の酸化物と、原子半径が小さい元素の酸化物を 2 種類以上組み合わせることが好ましい。原子半径が大きい元素の酸化物としては、カリウム酸化

物、チタン酸化物、バリウム酸化物、鉛酸化物等が挙げられる。原子半径が小さい元素の酸化物としては、ホウ素酸化物、ナトリウム酸化物、マグネシウム酸化物、リン酸化物等が挙げられる。

## 【0013】

本発明で使用する基板は、ガラス又はプラスチックから形成することができる。プラスチックとしては、アクリル系樹脂、エポキシ系樹脂、珪素系樹脂、ポリイミド系樹脂、ポリカーボネート系樹脂、ポリビニルアルコール系樹脂、ポリエチレン系樹脂等、又はそれらの共重合体を使用できる。プラスチックは放射線硬化性樹脂であることが好ましく、また、プラスチックのガラス転移温度は150℃以上であることが好ましい。

## 【0014】

本発明の有機発光素子の製造方法は、ガスバリア膜付き基板を用いた有機発光素子の製造方法であって、非晶質酸化物と、ホウ素酸化物、リン酸化物、ナトリウム酸化物、カリウム酸化物、鉛酸化物、チタン酸化物、マグネシウム酸化物及びバリウム酸化物からなる群から選択された少なくとも2種類の酸化物とを含むガスバリア膜を基板の少なくとも片面に形成するものである。また、必要に応じて、その後、前記ガスバリア膜を熱処理することもできる。なお、前記熱処理の温度は、前記ガスバリア膜の成膜温度以上で且つ前記基板のガラス転移温度以下の温度であることが好ましい。

## 【0015】

以下、本発明の実施の形態について、図面を用いて説明する。

## 【0016】

## (実施の形態1)

図1は、本発明のガスバリア膜付き基板を示す断面図である。図1において、1はガスバリア膜、2は基板、3はガスバリア膜付き基板である。また、図2は、本発明の有機発光素子を示す断面図である。図2において、24は陰極、25は有機発光層、26はホール輸送層、27は陽極である。

## 【0017】

先ず、RFマグネトロンスパッタを用いて、ガラスからなる基板2の片面上に

、非晶質酸化物である珪素酸化物と、ホウ素酸化物、チタン酸化物からなる厚さ 150 Å のガスバリア膜 1 を形成し、ガスバリア膜付き基板 3 を作製した。RF マグネトロンスパッタは、ガラス基板 2 を一定温度に保持した状態で珪素酸化物からなるターゲットの上にホウ素酸化物及びチタン酸化物のペレットを載せて行った。

## 【0018】

ここで、ガスバリア膜付き基板 3 の酸素ガス透過量を測定したところ、 $0.01 \text{ g/m}^2$  以下（測定限界以下）であった。

## 【0019】

以上のようにして形成したガスバリア膜付き基板 3 を 2 枚用意し、ガスバリア膜 1 を外側としたガスバリア膜付き基板 3 の間に陰極 24、有機発光層 25、ホール輸送層 26 及び陽極 27 を通常の方法で配置して有機発光素子を作製した。

## 【0020】

本実施形態のガスバリア膜では、ホウ素酸化物及びチタン酸化物が網目状の骨格からなる珪素酸化物の隙間を埋めることになるため、ガスの透過が抑制される。その結果、本実施形態のガスバリア膜付き基板を用いた有機発光素子では、外部より酸素や水蒸気等が素子内に入ることがなくなるため発光不良が発生しなかった。

## 【0021】

## （実施の形態 2）

ホウ素酸化物及びチタン酸化物を、リン酸化物及び鉛酸化物に代えたこと以外は、実施の形態 1 と同様にして有機発光素子を作成した。ガスバリア膜付き基板の酸素ガス透過量を測定したところ、 $0.01 \text{ g/m}^2$  以下（測定限界以下）であった。

## 【0022】

本実施形態のガスバリア膜では、リン酸化物及び鉛酸化物が網目状の骨格からなる珪素酸化物の隙間を埋めることになるため、ガスの透過が抑制される。その結果、本実施形態のガスバリア膜付き基板を用いた有機発光素子では、外部より酸素や水蒸気等が素子内に入ることがないため発光不良が発生しなかった。



## 【0023】

## (実施の形態3)

ホウ素酸化物及びチタン酸化物を、ナトリウム酸化物及びバリウム酸化物に代えたこと以外は、実施の形態1と同様にして有機発光素子を作成した。ガスバリア膜付き基板の酸素ガス透過量を測定したところ、 $0.01 \text{ g/m}^2$ 以下（測定限界以下）であった。

## 【0024】

本実施形態のガスバリア膜では、ナトリウム酸化物及びバリウム酸化物が網目状の骨格からなる珪素酸化物の隙間を埋めることになるため、ガスの透過が抑制される。その結果、本実施形態のガスバリア膜付き基板を用いた有機発光素子では、外部より酸素や水蒸気等が素子内に入ることがないため発光不良が発生しなかった。

## 【0025】

## (実施の形態4)

ホウ素酸化物及びチタン酸化物を、マグネシウム酸化物及びカリウム酸化物に代えたこと以外は、実施の形態1と同様にして有機発光素子を作成した。ガスバリア膜付き基板の酸素ガス透過量を測定したところ、 $0.01 \text{ g/m}^2$ 以下（測定限界以下）であった。

## 【0026】

本実施形態のガスバリア膜では、マグネシウム酸化物及びカリウム酸化物が網目状の骨格からなる珪素酸化物の隙間を埋めることになるため、ガスの透過が抑制される。その結果、本実施形態のガスバリア膜付き基板を用いた有機発光素子では、外部より酸素や水蒸気等が素子内に入ることがないため発光不良が発生しなかった。

## 【0027】

## (実施の形態5)

ホウ素酸化物及びチタン酸化物に更に鉛酸化物を加えたこと以外は、実施の形態1と同様にして有機発光素子を作成した。ガスバリア膜付き基板の酸素ガス透過量を測定したところ、 $0.01 \text{ g/m}^2$ 以下（測定限界以下）であった。

## 【 0 0 2 8 】

本実施形態のガスバリア膜では、ホウ素酸化物、チタン酸化物及び鉛酸化物が網目状の骨格からなる珪素酸化物の隙間を埋めることになるため、ガスの透過が抑制される。その結果、本実施形態のガスバリア膜付き基板を用いた有機発光素子では、外部より酸素や水蒸気等が素子内に入ることがないため発光不良が発生しなかった。

## 【 0 0 2 9 】

本実施形態では、珪素酸化物に 3 種類の他の酸化物を含有させたため、網目状の骨格からなる珪素酸化物の隙間をより完全に埋めることができるようになり、ガスの透過がより抑制される。

## 【 0 0 3 0 】

以上のように上記実施の形態 1 ～ 5 では、ガスバリア膜をガラス基板の片面のみに設けたが、両面に設ければより効果的である。

## 【 0 0 3 1 】

また、ガスバリア膜付き基板の材質としてガラスを用いたが、プラスチックを用いることもできる。この場合は、プラスチックはガラスに比べてガスの透過性が高いため、プラスチック基板の両面にガスバリア膜を設けることが好ましい。また、ガスバリア膜をプラスチック基板の両面に形成することで、熱膨張係数の差による基板の歪を軽減することができる。

## 【 0 0 3 2 】

## 【 発明の効果 】

以上説明したように、本発明では、非晶質酸化物と、ホウ素酸化物、リン酸化物、ナトリウム酸化物、カリウム酸化物、鉛酸化物、チタン酸化物、マグネシウム酸化物及びバリウム酸化物からなる群から選択された少なくとも 2 種類の酸化物とを含むガスバリア膜を基板に形成したガスバリア膜付き基板を用いることにより、網目状の骨格からなる非晶質酸化物の隙間を前記酸化物で埋めることができるため、ガスの透過が抑制される。その結果、有機発光素子にこのガスバリア膜付き基板を用いると、外部より酸素や水蒸気等が素子内に入ることが防止でき、発光不良が発生しないという有利な効果が得られる。

【図面の簡単な説明】

【図 1】

本発明のガスバリア膜付き基板の断面図である。

【図 2】

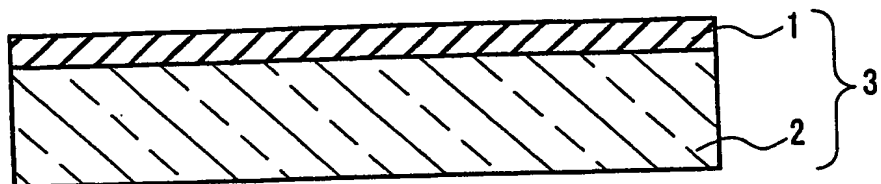
本発明の有機発光素子の断面図である。

【符号の説明】

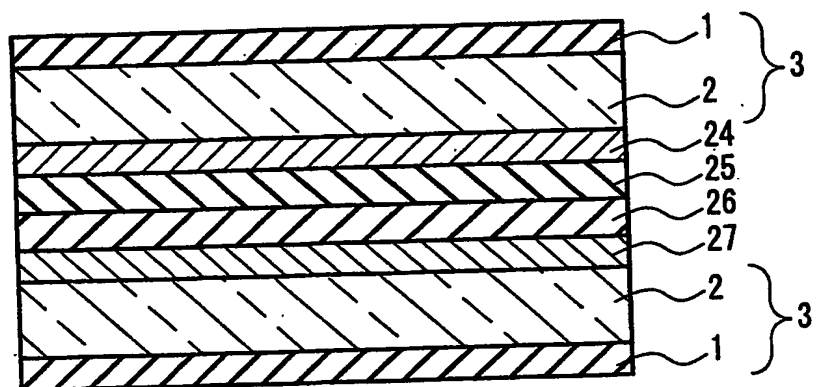
- 1    ガスバリア膜
- 2    基板
- 3    ガスバリア膜付き基板
- 2 4   陰極
- 2 5   有機発光層
- 2 6   ホール輸送層
- 2 7   陽極

【書類名】 図面

【図 1】



【図 2】



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 外部からの酸素や水蒸気等の侵入を防止することができるガスバリア性に優れた基板を用いた有機発光素子を提供する。

【解決手段】 非晶質酸化物と、ホウ素酸化物、リン酸化物、ナトリウム酸化物、カリウム酸化物、鉛酸化物、チタン酸化物、マグネシウム酸化物及びバリウム酸化物からなる群から選択された少なくとも2種類の酸化物とを含むガスバリア膜を基板に形成したガスバリア膜付き基板を用いた有機発光素子であって、前記選択された少なくとも2種類の酸化物が、原子半径が大きい元素の酸化物と原子半径が小さい元素の酸化物とを組み合わせたものであり、前記基板がガラス又はプラスチックから形成されている有機発光素子とする。

【選択図】 図1

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [000005821]

1. 変更年月日 1990年 8月28日

[変更理由] 新規登録

住 所 大阪府門真市大字門真1006番地

氏 名 松下電器産業株式会社